

熱間圧延を施したAl-1%Mn合金における  
析出物の多次元定量評価井 誠一郎<sup>1\*</sup>・池田 賢一<sup>2</sup>・原 徹<sup>1</sup>Journal of The Japan Institute of Light Metals, Vol. 75, No. 3 (2025), 144-150  
© 2025 The Japan Institute of Light MetalsMulti-dimensional quantitative analysis of  
precipitates in the hot-rolled Al-1%Mn alloySeiichiro II<sup>1\*</sup>, Ken-ichi IKEDA<sup>2</sup> and Toru HARA<sup>1</sup>

Precipitates formed during the hot-rolling process of Al-1%Mn alloy were quantitatively characterized by 3-dimensional (3-D) evaluation. The 3-D image was reconstructed using a serial sectioning technique by combining the focused ion beam and scanning electron microscopy (SEM). In the reconstructed 3-D volume, more than 10000 precipitates were extracted, and the log-normal distribution explained the size distribution well. We also quantitatively evaluated the precipitates from the 2-dimensional (2-D) SEM image taken during the serial-sectioning and from the scanning transmission electron microscopy (STEM) observation that the specimen was fabricated from the serial-sectioned sample. According to the data evaluated from the 2-D and the 3-D images, the average size of the precipitation measured by the 3-D image was larger than that of the 2-D images of SEM and STEM. That is presumed by the morphological anisotropy owing to hot rolling. We also discussed the effect of the number of the analyzed precipitates on the average size and distribution. The average size significantly depends on the number of analyzed precipitates. Besides, we evaluated the normality of the logarithmic distribution of the size by the Quantile-Quantile plot.

(Received August 21, 2024 Accepted October 31, 2024)

**Keywords:** quantitative analysis; precipitate; serial-sectioning; FIB-SEM; Al-Mn alloy

## 1. 緒 言

材料の特性がその微細構造に強く依存することはよく知られているが、近年は計算機シミュレーションによる組織や特性の予測とその予測に基づいた実証実験や、実験結果の裏付けを目的とした理論計算のように、実験と計算を併用した研究が盛んに行われ、計算機シミュレーションの重要性が高まっている。Olsonは、材料の構造および組織を表す各階層における最適な計算機シミュレーションによる材料設計の重要性を指摘した<sup>1)</sup>。また、Raabeは階層に応じた計算機シミュレーションの方法論などを系統的に整理している<sup>2)</sup>。計算機シミュレーションを用いたモデリングはアルミニウム合金においても行われており、特性改善に不可欠な加工熱処理プロセスの最適化を図るためのモデリング技術について、Hirschにより集約されている<sup>3)</sup>。モデリングの精度は、計算機の性能向上や計算手法の発展に伴い着実に高度化しているものの、多くの計算機シミュレーションでは種々のパラメータが必要であり、計算手法の発展もさることながら、パラメータ

の精度向上もモデリング精度の向上に重要な役割を果たす。

結晶粒径などの材料組織に関するパラメータ、すなわち組織因子の測定は、顕微鏡やX線などにより行われている。顕微鏡による組織観察においては、光学顕微鏡観察による試料表面（断面）の2次元観察によるデータから、第二相粒子の分率<sup>4)</sup>や平均結晶粒径<sup>5)</sup>などの組織因子を3次元で評価する方法が提案され、計量形態学として材料組織の定量化にしばしば適用されてきた<sup>6)</sup>。また、アルミニウムの組織因子として重要な析出物などのナノスケールの定量評価は、X線小角散乱（Small Angle X-ray Scattering：SAXS）が用いられてきた<sup>7)-10)</sup>。SAXSは、ナノスケールの第二相をバルクの状態で評価することが可能であり、静的な評価のみならず、近年はバルク試料の加熱に伴う組織変化の定量化<sup>10)</sup>など、定量評価には極めて有効な測定手法である。しかしながら、SAXSの測定結果は平均サイズであり、第二相を直接観察することは当然のことながら不可能である。加えて、SAXSはその装置の仕様上、数nm程度のサイズ評価に非常に効力を発揮することから、主にクラスタの評価に用いられている。クラスタ

<sup>1</sup> 国立研究開発法人物質・材料研究機構 構造材料研究センター（〒305-0047 茨城県つくば市千現1-2-1） Research Center of Structural Materials, National Institute for Materials Science (NIMS) (1-2-1, Sengen, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0047)

<sup>2</sup> 北海道大学大学院 工学研究院 材料科学部門（札幌市） Division of Materials Science and Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University (Sapporo-shi, Hokkaido)

\* 責任著者 E-mail: II.Seiichiro@nims.go.jp

の評価は3次元アトムプローブ(Three-dimensional Atom Probe: 3DAP)でも同様に行われ<sup>11)</sup>, 特に3DAPによる測定は濃度分布の評価に優れていることから濃度変調などの定量評価が行われているものの, 観察対象の領域が極めて小さく, 特に数十から数百nmの析出物を対象とした定量評価は困難である。

一方, 材料の内部組織は, 観察手法に加えて画像の再構築技術開発により微細構造を3次元で直接理解することが可能となった<sup>12)-24)</sup>。観察技術は異なるものの, 光学顕微鏡<sup>12)-14)</sup>, 走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)<sup>15), 16)</sup>, 透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)<sup>17)-19)</sup>に加えて, X線<sup>20)-24)</sup>でも3次元観察が可能であり, 各種組織因子の定量評価が試みられている。光学顕微鏡観察では, Matsuiらが純鉄<sup>12)</sup>, Horiuchiらが低炭素鋼<sup>13)</sup>を対象として, 研磨と腐食を交互に行うシリアルセクション法により再結晶粒の3次元観察を行い, 結晶粒の形状を評価し再結晶に伴う成長挙動との関連性を検討した。また, Wangらはパーライト組織における複相組織を3次元観察し, フェライト+セメンタイト二相組織の形態から相界面の湾曲度などを定量的に評価することで, セメンタイトの球状化などの組織変化との関係性を調査した<sup>14)</sup>。SEMによる3次元観察は, 集束イオンビーム(Focused Ion Beam: FIB)を組み合わせたFIB-SEMによるシリアルセクションが行われている。特に, HaraらはFIBをSEMの光軸に対して直交に配置したFIB-SEMを活用し, 耐熱鋼の析出組織やチタンのオメガ相など種々の複雑な組織について3次元観察に成功している<sup>15), 16)</sup>。TEMの場合は, 広範な傾斜角度での観察とコンピュータを用いた再構成による3次元像の取得が行われ, TEMが有する高い分解能を活かした個々の析出物や転位の形態観察に適用されている。アルミニウム合金を対象とした例として, Kanekoらは時効処理を施したAl-SiおよびAl-Ge合金を3次元観察し, 析出したSi相およびGe相の個々の形態評価に成功した<sup>17), 18)</sup>。また, X線を用いた3次元観察は非破壊観察である特徴を活かした動的な評価が行われ, 亀裂の進展挙動<sup>21)</sup>や破壊時のポアやボイド形成・成長<sup>22)</sup>などが報告されている。以上のように, それぞれの顕微鏡が有する空間分解能などの特徴を活かした3次元観察および定量評価が行われてきたが, アルミニウム合金の析出物を対象とした定量評価の事例はSAXSによるクラスタの評価が主である。近年, 放射光を用いたX線トモグラフィにより, バルク内部における析出物のサイズを測定した事例はあるものの<sup>23), 24)</sup>, 著者らが知る限り, 個々の析出物を定量測定し統計的な評価を行った結果は報告されていない。

本研究では, 熱間圧延を施したAl-Mn合金に対して, 直交配置型のFIB-SEMを用いたシリアルセクションにより微細組織を3次元で観察し, 熱間圧延中に生成した析出物の定量評価を試みた。Al-Mn合金における析出物については, Tanakaらが平面ひずみ圧縮に伴い形成したAl-Mn合金の下部組織を調査し, 熱間加工時の動的析出が熱的安定な下部組織を得るために重要であることを指摘している<sup>25)</sup>。また, 転位との相互作用においても析出物は重要な因子であり, そのサイズや分布は加工熱処理プロセスのモデリングに不可欠なパラメータの一部であるため, 本研究においても代表的な加工熱処理プロセスである熱間圧延中に生成する析出物に着目し

た。さらに, 3次元観察に加えてシリアルセクション中に得られる2次元像および3次元観察を行った領域から作製したTEM試料でも同様の評価を行い, これまでに行われてきた2次元像より得られる定量値と3次元像から得られる結果を比較した。

## 2. 実験方法

供試材は, 1050アルミニウム合金相当の純アルミニウムに1mass%のマンガン(Mn)を添加したAl-1%Mn合金である。Table 1に本研究で用いた供試材の組成を示す。DC castingによりインゴットを作製した後, 500°Cで熱間試料を施した圧延板に対して, FIB-SEMによるシリアルセクションを行った。シリアルセクション用試料は, 機械研磨および電解研磨により表面を鏡面に仕上げた後, FIBにより1辺が約30 $\mu$ mの立方体を切り出した。シリアルセクションは, 株式会社日立ハイテクサイエンス社製SMF-1000を用いて行った。汎用装置と本研究で用いたFIB-SEMのFIBとSEMの配置を表した模式図に加えて, シリアルセクション時の試料配置をFig. 1に示す。Fig. 1(a)に示すように通常のFIB-SEMにおけるFIBとSEMが約60°の角度を有する配置であるのに対して, Fig. 1(b)に示すように本研究で用いたFIB-SEMは前述の通りFIBとSEMが直交に配置しており, 高解像度のSEM像取得が可能となる。本研究におけるGa<sup>+</sup>イオンを用いたFIB加工の条件は, 加速電圧1kV, 電流量2nA, スライス間隔を5nmに設定し, 室温で行った。また, SEM像は, 加速電圧1kV, 観察領域を20 $\times$ 20 $\mu$ m<sup>2</sup>, 解像度を2000 $\times$ 2000pixelとして, 析出物のコントラストが明瞭となるように2次電子と反射電子による信号を組み合わせで取得した。すなわち, 定量的な解析を行う際の最小体積要素を表す3次元空間上の1ボックスが10 $\times$ 10 $\times$ 5nm<sup>3</sup>の直方体に相当する。FIB加工とSEM観察を繰り返し約1000枚のSEM像を取得し, 3次元像の構築を行った。3次元像の構築および析出物の抽出は, Image-Pro (MEDIA CYBERNETICS, Ver.10)を用いてコントラストの等値面を作成し, 析出物を抽出した。抽出した析出物のサイズ情報から定量評価に供した。また, シリアルセクションを行った領域の一部に対して, FIBによる追加工を行い薄膜試料を作製し, 走査透過型電子顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscope: STEM)観察を行った。観察に用いたSTEMは日本電子(株)製JEM-2800であり, 加速電圧200kVでSTEM観察および付随するエネルギー分散X線分光(Energy Dispersed X-ray Spectroscopy: EDS)装置を用いた元素分析を行った。

## 3. 結果および考察

### 3.1 シリアルセクションによる3次元観察

Fig. 2(a)は, シリアルセクション中に取得したSEM像から構築した3次元像である。X, Y, およびZ方向は, それぞれRD, ND, TD方向に対応している。3次元像の上部は暗いコントラストである一方, 下部が比較的明るいコントラストで構成されている。これは, 上部と下部で方位の集積が異なることに起因する。また, Fig. 2(a)の中央付近で上下のコントラストが異なる領域付近にみとめられるX方向に伸長した極めて明るいコントラストは, 铸造時に生成した晶出物である。一方, 本研究で解析対象とした析出物は3次元像全

Table 1 Chemical composition of the specimen used in this study

(mass%)								
Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.16	0.34	<0.01	0.99	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	Bal.

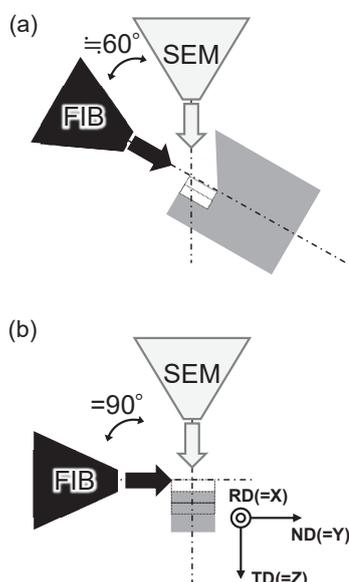


Fig. 1 Schematic drawing of typical configurations of the FIB-SEM system. (a) Conventional arrangement and (b) Orthogonally configured system. The geometry of the specimen in the serial sectioning conducted in this experiment is also indicated in (b).

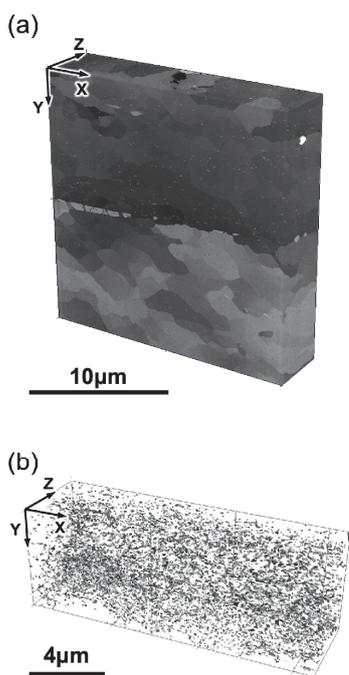


Fig. 2 (a) 3D volume of the hot-rolled Al-Mn alloy reconstructed from the series of images taken by the serial sectioning technique, and (b) precipitates extracted from the 3D volume in (a).

体にわたって非常に小さなコントラストとしてみとめられ、特にマトリックスが暗いコントラストで構成されている上部領域において、白い小さなコントラストが点在している様子がわかる。Fig. 2(b) には、Fig. 2(a) に示した3次元像より計測対象としている析出物を抽出した像を示す。析出物を明瞭

に示すために、抽出した析出物が暗いコントラストとなるように画像処理を行っている。なお、析出物を抽出するために必要な処理を Fig. 2(a) に示した3次元像全体に対して行ったものの、Fig. 2(a) に示す下部領域のような析出物とマトリックスのコントラスト差が小さい領域は、析出物の抽出が困難であったために対象領域から除外し、一部の領域を用いて定量評価を行った。領域のサイズは約  $16.0 \times 5.7 \times 4.6 \mu\text{m}^3$  であり、領域内で認識された析出物は11186個であった。

Fig. 3に、抽出した全析出物の直径のヒストグラムを示す。本研究では、フェレ径と呼ばれる測定した析出物に外接する最長辺と最短辺の平均を直径(サイズ)とみなして評価を行った。サイズ分布を対数正規分布と仮定してフィッティングを行ったところ、フィッティングプロファイルとデータは良い一致を示し、析出物のサイズ分布は対数正規分布でおおむね説明できる。前述の通り、アルミニウム合金における析出物のサイズやその分布については、X線小角散乱を用いた Harknessら<sup>8)</sup>や Osamuraら<sup>9)</sup>によるG.P.ゾーンの分布など、数nmの準安定相に関する報告はあるものの、100nm程度の安定相である析出物について10000個程度の析出物を個々に測り、分布も含めてサイズを統計的に示した事例は本研究が初めてである。なお、20nm近傍でみとめられるフィッティングプロファイルからのずれは、シリアルセクションングに用いたSEM像を取得する際の解像度を10nm/pixelに設定したことに加えて、その1pixel程度のノイズが析出物の抽出を目的とした画像処理で数pixelに広がったために、20nm前後のコントラストとしてみとめられた結果、析出物としてカウントされた可能性が考えられる。

### 3.2 STEM観察およびEDSによる元素分析

本研究で用いたFIB-SEMによるシリアルセクションングの特徴のひとつとして、観察領域をTEM観察用の薄膜試料に加工できることが挙げられる。Fig. 4に、シリアルセクションング後の試料の一部を追加加工することで得られたTEM試料をSTEM観察した際に得られた環状暗視野(Annular Dark Field: ADF)像、および点線で囲われた領域に対してEDSによる元素分析を行った際に得られた、本合金の主要元素であるMn、不純物として知られている鉄(Fe)、Siのマッピング、および3種類の元素マッピングを重ね合わせた図を示す。EDS分析の結果、STEM像において楕円形状の明るいコントラストとしてみとめられる析出物は、Mnに加えてFe、Siを含んでおり、低純度のAl-Mn系合金でみとめられる4元系の化合物である $\alpha$ 相(Al(Mn, Fe)Si)であると考えられる。Liらは、3003Al合金において500°Cでの熱処理を施した試料で $\alpha$ 相の存在を報告しており<sup>26)</sup>、観察試料の熱履歴を考慮しても観察された析出物が $\alpha$ 相であることは妥当であると考えられる。 $\alpha$ 相の存在は、Tanakaらによる調査でも確認されている<sup>27)</sup>。

### 3.3 析出物の定量評価

Fig. 3で示したように、2次元環境での析出物の定量評価を試み、対数正規分布でフィッティングできることがわかっ

た。緒言でも述べたように、顕微鏡観察におけるサイズの一般的な測定は、3次元であったとしても2次元像からの計測が通常の方法であった<sup>4)-6)</sup>。本研究では、3次元での直接解析が可能であることから、3次元像と2次元像の評価結果を比較するために、Fig. 5に示した3次元像構築の1枚目のSEM像、およびシリアルセクションを行った後に作製した薄膜試料を観察した際に得られたFig. 4(a)に示すSTEM-ADF像を用いた析出物の解析結果を比較した。

Fig. 6に2次元のSEMおよびSTEM像から抽出された析出物のサイズ分布をヒストグラムとして示す。いずれも3次元像と同様にソフトウェアを用いて析出物の抽出を行い、それぞれSEM像より206か所、STEM像より147か所の領域を析出物として検出した。そのうち、2次元観察の像では、検出

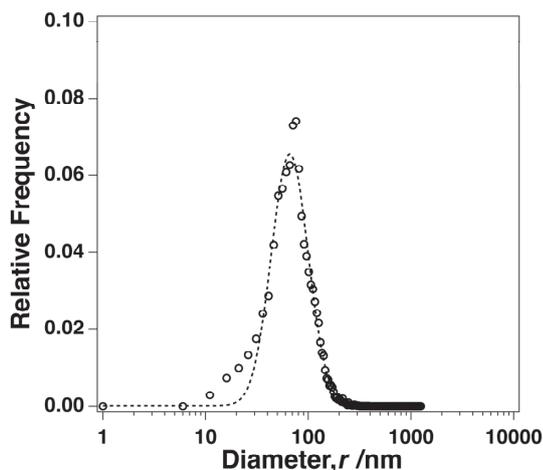


Fig. 3 Histogram of the diameter of precipitates observed in Fig. 2 (b). The dashed line is the fitting profile of the histogram based on the log-normal distribution.

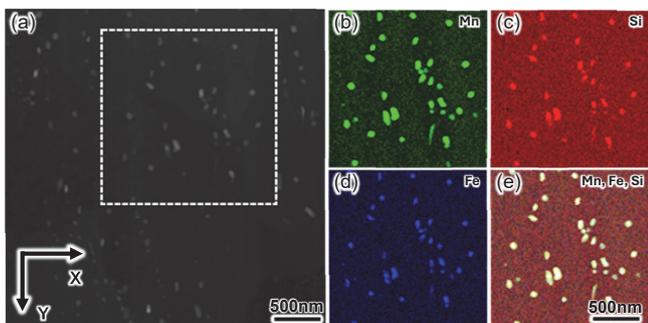


Fig. 4 STEM-EDS analysis of Al-Mn alloy. The specimen was taken from the serial-sectioned piece. The electron beam is parallel to the TD direction. (a) STEM-ADF image. (b)-(e) EDS maps showing the distribution of (b) Mn, (c) Si, (d) Fe, and (e) overlaid Mn, Fe, and Si, respectively. (Online version in color)



Fig. 5 The image of the TD plane on the surface of the constructed 3D volume viewed from the Z-direction in Fig. 2 (b).

された1辺の長さがSEMおよびTEM像の解像度である10 nm/pixel (SEM) と3.38 nm/pixel (TEM) 以下のサイズで検出された領域はノイズとして除去し、SEM像では160か所、STEM像では129か所の領域を析出物として定量評価を行った。Fig. 3に示す本研究で対象とした全析出物のヒストグラムと同様に、対数正規分布を仮定してフィッティングを行ったものの、対象となる析出物の個数が少ないため、Fig. 6(a)に示すSTEM-ADF像、Fig. 6(b)に示すSEM像より抽出した析出物のサイズ分布のヒストグラムでは、フィッティングプロファイルと比較してデータがばらついている。また、Table 2に各々の像から抽出された析出物のサイズについて得られた結果を示す。3次元像において検出された全析出物の平均サイズは81.24 nmであったが、2次元像から検出された析出物の平均サイズはSEM、TEM観察手法によらず約53 nmとなり、3次元像から得られた平均サイズと比べて小さい。この相違の理由を明らかにするために、観察方向の影響を調査した。その結果をFig. 7に示す。Fig. 7は、それぞれ3次元像の(a) Z-X面、および(b) Y-Z面から見た組織であり、それぞれND、RD方向からの観察に対応する。ここで、RD方向のSEM像

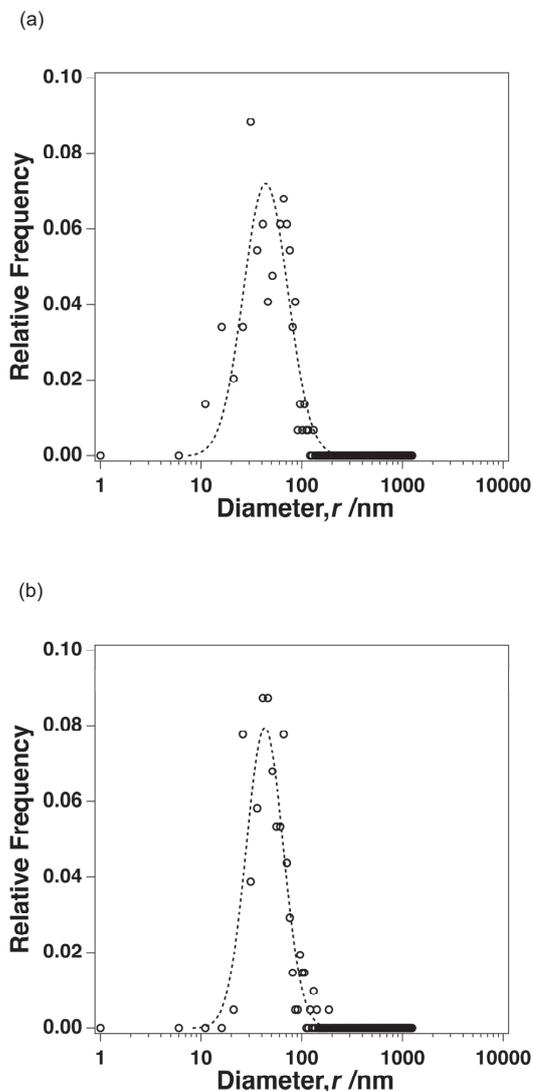


Fig. 6 Histograms of the diameter of precipitates observed in (a) STEM image in Fig. 4 (a), (b) SEM image shown in Fig. 5. The dashed lines are the fitting profile based on the log-normal distribution.

は、Fig. 7(a) および (b) のZ方向を揃えるために90°反時計方向に回転している。Fig. 7で示した像は、Fig. 2(b) に示す3次元像におけるZ-X面の最上面とY-Z面の最左面に対応する。Fig. 7(a) および (b) 両方のSEM像において、その量は少ないもののZ方向に伸長した析出物がみとめられる。3次元像の測定では、このZ方向に伸長した析出物も含めて計測したために、TD方向からの観察により得られた2次元のSEMおよびSTEM像と比較して平均サイズが大きくなったと考える。すなわち、圧延のような塑性加工を経て、異方性が存在

し得る試料を観察する際には、組織の異方性も考慮した多方向からの観察が必要であることを示した結果であるといえる。

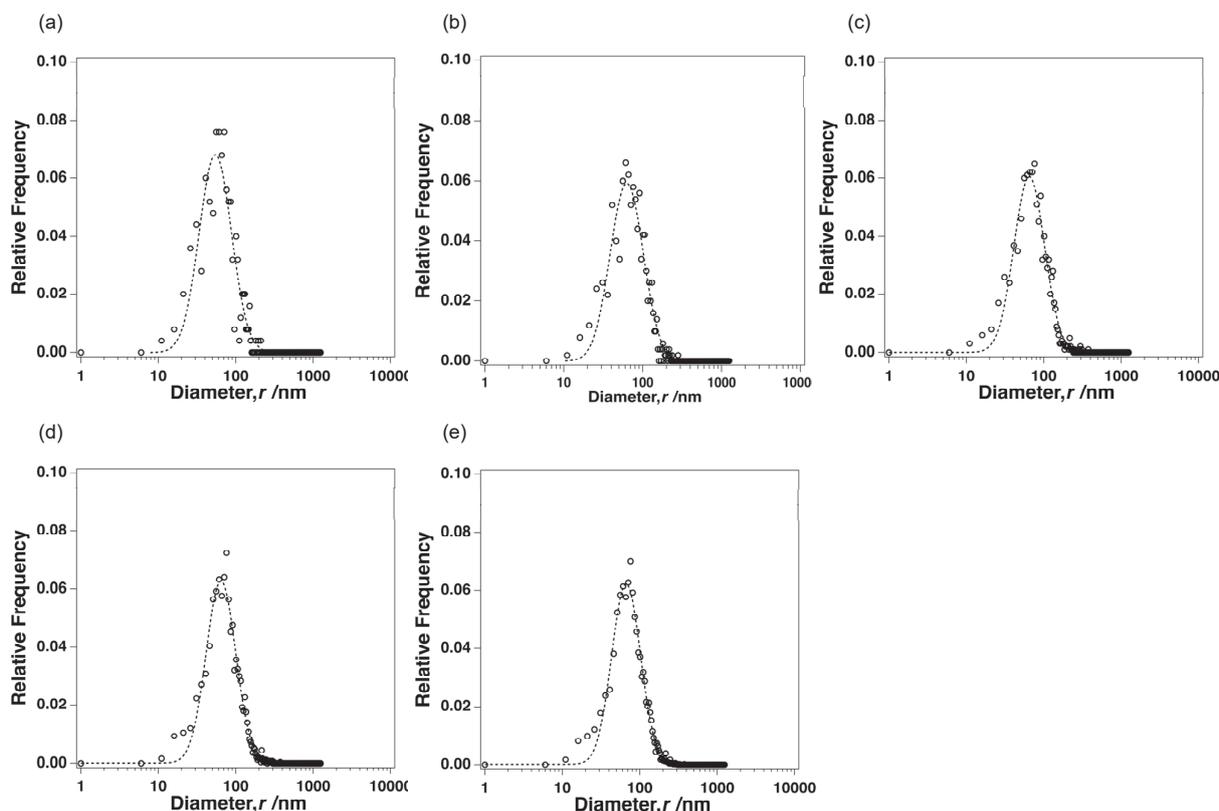
これまでに、シリアルセクションングにより得られた3次元像および2次元のSEM、STEM像を用いて析出物の定量評価を試み、サイズの差やフィッティングプロファイルに対するデータのばらつきなどの特徴を明らかにした。その原因のひとつとして異方性の影響を検討したが、測定した析出物の総数も3次元像と2次元のSEM、STEM像で2桁異なる。そこで、測定対象とした析出物数 ( $N$ ) の影響も検討した。Fig. 8は、異なる $N$ のサイズ分布から得られたヒストグラムである。それぞれのヒストグラムで対象とした析出物は、全析出物の中心座標のうちZ軸の座標を $Z=0$ から並べて任意の数を抽出した。すなわち、Fig. 2(a)におけるX-Y (TD) 面の手前から奥に向かって、設定した数を含む任意の体積におけるサイズ分布の評価に対応する。Fig. 8(a) に示すように $N=250$ のヒストグラムでは、2次元像を用いた測定と同様にフィッティングプロファイルに対してデータのばらつきがみとめられる。しかしながら、Fig. 8(b) に示した $N=500$ の結果から徐々にフィッティングプロファイルとヒストグラムが近づき、Fig. 8(e) に示す $N=5000$ のヒストグラムでは、Fig. 3に示した3次元像の全領域から抽出した $N=11183$ の結果と同様に、20 nm近傍のずれを除けばフィッティングプロファイルとデータはよく一致する。これら一連のヒストグラムから求めた平均サイズと $N$ の関係はFig. 9に示す。測定析出物数の増加に伴い平均サイズは上昇し、1000を超えると図中に破線で示した全析出物の平均値である81.24 nm近傍で一定の値となることがわかる。すなわち、本研究で観察を行った試料に

**Table 2** Statistic data of the precipitates obtained from the images of 3D-SEM in Fig. 2 (b), 2D-SEM in Fig. 5, and 2D-STEM in Fig. 4 (a), respectively.  $N$  is the number of analyzed precipitates,  $\bar{D}$ ,  $\sigma$ , and  $SE$  are the average diameter, standard deviation and standard error measured from the data, respectively.

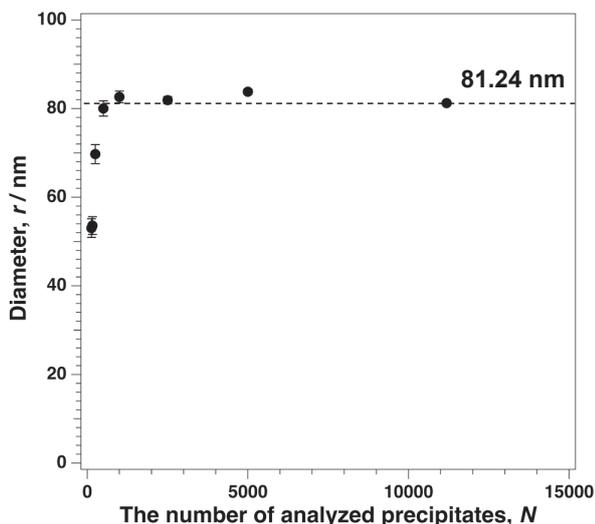
	$N$ (-)	$\bar{D}$ (nm)	$\sigma$ (nm)	$SE$ (nm)
3D SEM	11186	81.24	34.842	0.003
2D SEM	160	53.60	25.324	2.002
2D STEM	129	53.02	23.837	2.099



**Fig. 7** (a) ND (Z-X) and (b) RD (Y-Z) planes of the 3D volume shown in Fig. 2 (b), each plane corresponds to (a)  $Y=0$  and (b)  $X=0$ , respectively.



**Fig. 8** Effect of the number of analyzed precipitates,  $N$ , on the histogram. In each histogram,  $N$  is (a) 250, (b) 500, (c) 1000, (d) 2500, and (e) 5000, respectively.

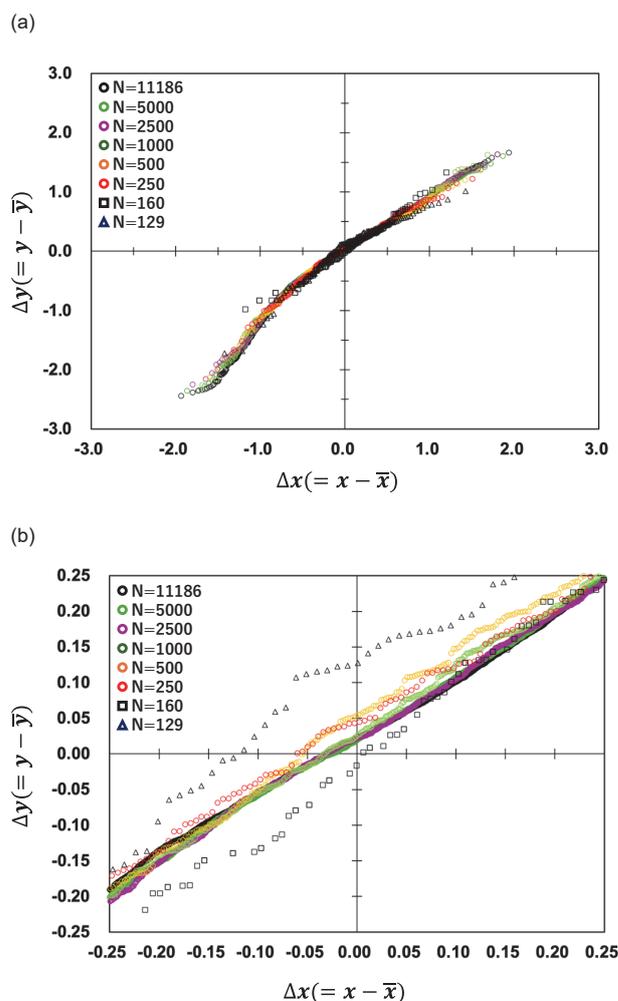


**Fig. 9** Effect of the number of analyzed precipitates,  $N$ , on the average diameter of the precipitates. The average diameter of all precipitates detected in the 3D volume shown in Fig. 2 (b), 81.24 nm, is indicated in this graph with the dashed line. Error bars represent a standard error.

ついて定量評価を行う際には、少なくとも  $N=1000$  の析出物を評価する必要があることを示唆している。ただし、 $N=1000$  という値があらゆる材料の評価に適用できるかどうかは、さらなる検証が必要である。

### 3.4 析出物サイズの正規性

Fig. 8などで示したように、3次元および2次元像から抽出した析出物の定量評価を試みると、種々の相違がみとめられた。特に、フィッティングプロファイルに対するデータのばらつきは定性的な表現を行ったが、定量的に評価するために、正規性の比較を試みた。この正規性は、実験的に得られた測定値と、測定値の分布が完全に正規分布に従うと仮定した場合に得られる期待値をプロットすることで得られ、Quantile-Quantile (Q-Q) プロットとして知られている<sup>28),29)</sup>。すなわち、測定値が完全な正規分布であれば期待値と等しくなり、Q-Qプロットは原点を通る傾き1、すなわち  $y=x$  の線形関係で表される。本研究では、測定した析出物のサイズが対数正規分布を示すことから、サイズの対数を測定値としてその正規性を検討した。Fig. 10は、Fig. 3, Fig. 6, およびFig. 8に示したヒストグラムのデータに関するQ-Qプロットである。このプロットでは、x軸を正規分布に従うと仮定した場合の期待値、y軸を本研究で得られた測定値とした。なお、それぞれのヒストグラムで求められる平均値などの統計量が異なることから、比較を容易にするために、期待値および測定値とそれぞれの平均値との差である  $\Delta x$ ,  $\Delta y$  をプロットした。Fig. 10(a) に示す全測定点を示したプロットでは、いずれのプロットも原点近傍を通過しているものの、両端、すなわち極端にサイズが平均から離れている析出部については、線形関係からずれている。Fig. 10(b) には、原点近傍、すなわち平均値近傍を拡大したプロットを示す。この拡大したプロットでは、3次元像から得られた結果も含めて  $N$  が少ないものほど直線関係から外れている。すなわち、単純に次元の差ではないことを示唆している。また、そのずれについても  $N$  の増加に伴い直線関係に収束していることがわかる。この結果を定量的に評価するために、線形近似から求められる決定係



**Fig. 10** (a) Q-Q plot of the distribution of the measured diameter,  $y$ , and the theoretical one,  $x$ , based on the assumed log-normal distribution with the average and standard deviation obtained from measurement. The enlarged graph around the original point is also shown in (b). In these graphs, vertical and horizontal axes represent the difference from the average value of  $\bar{x}$  and  $\bar{y}$ , respectively. (Online version in color.)

数  $R^2$  を  $N$  に対してプロットした図を Fig. 11 に示す。もっとも少ないSTEM像から得られた結果であっても、 $R^2$  は 0.94 を超えて比較的高い値を示すが、Fig. 9に示す平均サイズと  $N$  の関係と同様に、 $N$  の増加に伴い決定係数も増加する。

以上のように、析出物の統計評価を目指した一環として、加工熱処理を施したAl-Mn合金について3次元観察を行い析出物のサイズについて統計評価を試み、副次的に得られる2次元像の観察結果と比較した。本研究では1種類の試料に対して評価を行ったが、条件を変えた試料に対して同様な評価を行うことで、平均サイズなどの特定の値のみならず、その分布の変化を検討することもできる。今後は、他の組織でも試み、形状や数密度、粒子間距離など析出物のサイズ以外のパラメータを種々適切な条件下で取得することで、モデリング精度のいっそうの向上だけでなく、組織変化の本質にも迫ることが期待できる。

## 4. 結 言

本研究では、直交配置型のFIB-SEMによるシリアルセクションおよびその後のSTEM観察により、Al-1%Mnの熱

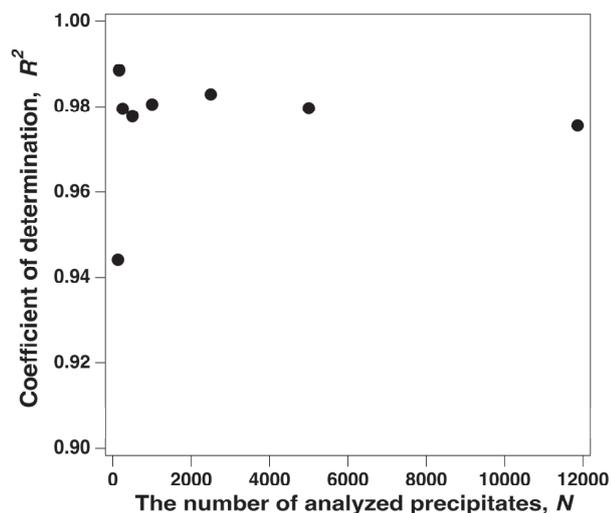


Fig. 11 Relationship between the coefficient of determination,  $R^2$ , obtained from the least squares fitting of the Q-Q plot in Fig. 10 and the number of analyzed precipitates,  $N$ .

間圧延板に存在する析出物の定量評価を多次元で行った。得られた結果を以下に示す。

(1) シリアルセクションングにより構築した3次元像より11186個の析出物を抽出し、定量評価を行った。サイズ分布は対数正規分布に従った。

(2) 3次元像から求めた析出物のサイズは81.24 nmであった。一方、SEMおよびSTEMの2次元像から求めたサイズは約53 nmであった。構築した3次元像をNDおよびRD方向から確認すると、TD方向に伸長した析出物がみとめられた。2次元像では観察不可能であったTD方向の情報も含めて3次元像で評価を行ったことが、サイズの差が生じた理由の1つであると考えられる。

(3) 3次元像においてTD方向に沿って任意の数だけ析出物を抽出し、そのサイズ分布を検討した。対象とした析出物数が増すにつれ平均サイズは増大し、1000個以上でおおむね一定のサイズとなった。これは、少なくとも本研究における統計解析を行うためには1000個の析出物が必要であることを示唆している。

(4) 本研究で得られた析出物のサイズ分布の正規性をQuantile-Quantile (Q-Q) プロットにより評価した。Q-Qプロットから求める正規性の定量的な評価を線形回帰により試みたところ、対象析出物数にかかわらず0.94以上の高い決定係数を示したが、平均サイズと同様に対象析出物数の増加に伴い決定係数も増加した。

(5) 定量評価における3次元観察は極めて有効かつ重要であることがわかった。特に、圧延などの加工を施し組織に異方性が存在する試料の定量評価は、2次元観察の場合でも複数方向から観察する必要があることを実験的に示した。

## 謝 辞

本成果は、一般社団法人軽金属学会研究部会「加工熱処理工程における動的/静的組織形成予測部会」での活動を通じて得られました。関係者各位に深く感謝申し上げます。また、

FIB-SEMを用いたシリアルセクションングによる3次元像の構築は、文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業（課題番号JPMXP1223NM 5406）の支援を受け、国立研究開発法人物質・材料研究機構で実施されました。献身的に支援いただいた中村 晶子氏をはじめ、関係者各位に御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) G. B. Olson: *Science*, **277** (1997), 1237-1242.
- 2) D. Raabe: *Computational Materials Science*, Wiley-VCH Verlag GmbH, Weinheim (1998). (Online version)
- 3) J. Hirsch: *Virtual fabrication of aluminum products*, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim (2006).
- 4) E. E. Underwood: *Particle-size Distribution, Quantitative Microscopy*, R. D. DeHoff, and F. N. Rhines ed., McGraw-Hill Book Inc., New York (1968), 149-200.
- 5) F. Schückler: *Grain Size, Quantitative Microscopy*, R. D. DeHoff and F. N. Rhines ed., McGraw-Hill Book Inc., New York (1968), 201-265
- 6) R. D. DeHoff, and F. N. Rhines ed.: *Quantitative Microscopy*, McGraw-Hill Book Inc., New York (1968).
- 7) R. Baur and V. Gerold: *Acta Metall.*, **12** (1964), 1449-1453.
- 8) S. D. Harkness, R. W. Gould and J. J. Hren: *Philos. Mag.*, **19** (1969), 115-128.
- 9) K. Osamura and H. Okuda: *Trans. Japan Inst. Metals*, **25** (1984), 672-682.
- 10) E. Kobayashi, M. Ohnuma, S. Kuramoto, J. Kobayashi and G. Itoh: *J. Japan Inst. Light Metals*, **71** (2021), 562-568.
- 11) T. Homma: *J. Japan Inst. Light Metals*, **73** (2023), 332-339.
- 12) T. Matsui, T. Ogawa and Y. Adachi: *Results in Materials*, **1** (2019), 100002.
- 13) K. Horiuchi, T. Ogawa, Z. Wang and Y. Adachi: *Materials*, **14** (2021), 4154.
- 14) Y. -T. Wang, Y. Adachi, K. Nakajima and Y. Sugimoto: *Acta Mater.*, **58** (2010), 4849-4858.
- 15) T. Hara: *Kenbikyō*, **49** (2014), 53-58.
- 16) T. Hara, K. Tsuchiya, K. Tsuzaki, X. Man, T. Asahata and A. Uemoto: *J. Alloys Comp.*, **577** (2013), S717-S721.
- 17) K. Kaneko, K. Inoke, K. Sato, K. Kitawaki, H. Higashida, I. Arslan and P. A. Midgley: *Ultramicroscopy*, **108** (2008), 210-220.
- 18) K. Kaneko, R. Nagayama, K. Inoke, E. Noguchi and Z. Horita: *Sci. Tech. Adv. Mater.*, **7** (2016), 726-731.
- 19) S. Hata, T. Honda, H. Saito, M. Mitsuhashi, T. C. Peterson and M. Murayama: *Curr. Opin. Solid St. Mater. Sci.*, **24** (2020), 100850.
- 20) M. Kobayashi, H. Toda, K. Uesugi, A. Takeuchi and Y. Suzuki: *J. Japan Inst. Light Metals*, **64** (2014), 510-517.
- 21) O. Kuwazuru, K. Matsumura, V. Aguiar de Souza, M. Kobayashi and H. Toda: *J. Japan Inst. Light Metals*, **64** (2014), 570-575.
- 22) T. Hojo, M. Kikuchi, K. Shimizu, H. Toda, A. Takeuchi and E. Akiyama: *J. Japan Inst. Light Metals*, **68** (2018), 630-634.
- 23) H. Toda, K. Uesugi, A. Takeuchi, K. Minami, M. Kobayashi and T. Kobayashi: *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006), 143112.
- 24) Y. Takahashi, Y. Nishino, T. Ishikawa and E. Matsubara: *Appl. Phys. Lett.*, **90** (2007), 184105.
- 25) H. Tanaka, and W. Narita: *Mater. Trans.*, **59** (2018), 1701-1705.
- 26) Y. J. Li, A. M. F. Muggerud and A. Olsen and T. Furu: *Acta Mater.*, **60** (2012), 1004-1014.
- 27) H. Tanaka, K. Sasaki and S. Tateyama: *J. Japan Inst. Light Metals*, **71** (2021), 549-554.
- 28) M. B. Wilk and R. Gnanadesikan: *Biometrika*, **55** (1968), 1-17.
- 29) J. R. Michael: *Biometrika*, **70** (1983), 11-17.